

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-256517

(43)Date of publication of application : 13.09.1994

(51)Int.Cl.

C08G 75/02  
C08L 81/02

(21)Application number : 05-047962

(71)Applicant : DAINIPPON INK &amp; CHEM INC

(22)Date of filing : 09.03.1993

(72)Inventor : YANAGIDA TAKUMI  
SUGIE TOSHINORI**(54) POLYARYLENE SULFIDE HAVING HIGH REACTIVITY WITH EPOXYSILANE AND RESIN COMPOSITION CONTAINING THE RESIN**

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject polyarylene sulfide having respective specific melt flow rate and melt viscosity, exhibiting excellent moisture resistance, thermal stability and mechanical properties and useful for injection molding, sealing, etc.

CONSTITUTION: This polyarylene sulfide has a melt flow rate of  $\geq 600\text{g}/10\text{min}$  at  $316^\circ\text{C}$  and a melt viscosity increasing degree of 4.0-12.0 caused by the kneading at  $320^\circ\text{C}$  for 5min in a state mixed with 1.0wt.% (based on the polyarylene sulfide) of  $\gamma$ -glycidoxypropyltrimethoxysilane. A resin composition is produced by using this polyarylene sulfide, a silane compound having epoxy group and a filler as essential components.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-256517

(43)公開日 平成6年(1994)9月13日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 0 8 G 75/02	NTX	7308-4J		
C 0 8 L 81/02	LRG	7308-4J		

審査請求 未請求 請求項の数3 OL (全7頁)

(21)出願番号 特願平5-47962

(22)出願日 平成5年(1993)3月9日

(71)出願人 000002886

大日本インキ化学工業株式会社  
東京都板橋区坂下3丁目35番58号

(72)発明者 柳田 拓巳

大阪府泉大津市東助松町3-3-31

(72)発明者 杉江 敏典

大阪府高石市千代田4-5-5

(74)代理人 弁理士 高橋 勝利

(54)【発明の名称】 エポキシシランとの反応性が高いポリアリーレンスルフィド及び該樹脂を含んでなる樹脂組成物

(57)【要約】

【構成】 (1) 316℃におけるメルトフローレートが600g/10分以上であり、かつァーグリシドキシプロビルトリメトキシシラン1.0% (対ポリアリーレンスルフィド重量比) 添加時において、320℃5分間混練後の溶融粘度の上昇度が4.0~12.0の範囲にあるエポキシシランとの反応性が高いポリフェニレンスルフィド。(2) このようなポリフェニレンスルフィドと、エポキシ基含有シラン系化合物例えばァーグリシドキシプロビルトリメトキシシランと、ガラス繊維及び/または無機充填剤を必須成分として含有する樹脂組成物。

【効果】 従来に比べてエポキシシランとの反応性が高いポリアリーレンスルフィドであるため、エポキシシランを添加した際の曲げ強度、曲げ伸び、衝撃強度等の機械的物性の向上効果が大きい。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 316℃におけるメルトフローレートが600g/10分以上であり、かつァーグリシドキシプロビルトリメトキシシラン1.0%（対ポリアリーレンスルフィド重量比）添加時において、320℃5分間混練後の熔融粘度の上昇度が4.0～12.0の範囲であることを特徴とするポリアリーレンスルフィド。

【請求項2】 (A) 請求項1記載のポリアリーレンスルフィド、(B) エポキシ基を有するシラン系化合物、および(C) 充填材を必須成分として含有することを特徴とする樹脂組成物。

【請求項3】 (A') 請求項1記載のポリアリーレンスルフィドを熱架橋処理した樹脂、(B) エポキシ基を有するシラン系化合物、および(C) 充填材を必須成分として含有することを特徴とする樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、エポキシシランとの反応性が高く、その添加によって機械的物性、耐湿性、熱安定性等が著しく向上するような新規ポリアリーレンスルフィド及びこのようなポリアリーレンスルフィドを含む樹脂組成物に関するものであり、各種の成形加工分野において利用されるものである。

## 【0002】

【従来の技術】 ポリアリーレンスルフィド（以下、PASと略す）は耐熱性、耐薬品性に優れた熱可塑性ポリマーであり、各種の成形加工分野に利用されている。通常、成形品の十分な機械的強度を得るために、熱架橋処理によって分子量を上げたPASが用いられることが多いが、このような処理を行うと強度は得られるが脆くなるといった欠点が生じる。このような問題を解決する手段の一つとして、エポキシシラン等のシランカップリング剤を添加する方法があるが、低沸点のため、その添加量には限度があり、十分な効果は得られていなかった。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 上記のような理由により、エポキシシランを含むPAS樹脂組成物を製造する際には、限られた添加量で十分な物性の向上を達成する必要があるが、そのためには、PASとエポキシシランとの反応性を向上させることが不可欠となってくる。つまり、エポキシシランとの反応性が高いPASを合成すれば、限度内で十分な物性向上効果が得られることになる。また、このようなPASを用いれば、同じ添加効果を得るためのエポキシシラン添加量は少なくなり、このことは、品質面のみならず、安全性、経済性からみても非常に望ましいことである。

【0004】 本発明者らはこの点に着目し、検討を積み重ねた結果、従来のPASと比較してエポキシシランとの反応性が高い新規PASを合成することに成功した。すなわち本発明は、エポキシシランとの反応性の高い新

規PAS及びこのようなPASを含む樹脂組成物を提供するものである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 一般的に、ポリアリーレンスルフィドは、アルカリ金属硫化物、ポリハロ芳香族化合物とを有機極性溶媒存在下で重合して製造されるものであって、例えば特公昭45-3368号、USP3919177、USP4415729、USP4645826等に開示されているような方法で製造され得る。本発明者らはアルカリ金属硫化物に一定量以上のアルカリ金属水酸化物を添加することにより、さらには重合反応終了後の処理方法を工夫することにより、エポキシシランとの反応性が高いPASが得られることを見出した。

【0006】 即ち、本発明は、316℃におけるメルトフローレートが600g/10分以上であり、かつァーグリシドキシプロビルトリメトキシシラン1.0%（対ポリアリーレンスルフィド重量比）添加時において、320℃5分間混練後の熔融粘度の上昇度が4.0～12.0の範囲であることを特徴とするポリアリーレンスルフィドにある。

【0007】 エポキシシランとの反応性が高い本発明のPASを製造法としては、例えば極性有機溶媒中でアルカリ金属硫化物とポリハロ芳香族化合物と反応せしめる際に、使用するアルカリ金属硫化物に対して一定量以上のアルカリ金属水酸化物を添加する、即ち3～20%、好ましくは4～10%（モル比）のアルカリ金属水酸化物を添加することを必須とする方法がある。なお、通常アルカリ金属硫化物中にはアルカリ金属硫化物、アルカリ金属チオ硫化物が微量存在するので、これらと反応させて全量を硫化アルカリ金属に代える目的のために極微量（モル比で1%程度）のアルカリ金属水酸化物を添加することは、例えば特開昭62-177027号の記載からも知られている通り、すでに製造時の一般的手段である。しかし、本発明の目的とするエポキシシランとの反応性が高いPASを得るには、アルカリ金属硫化物に対して前記目的のための量を越えた一定量のアルカリ金属水酸化物を添加する（モル比で3～20%、好ましくは4～10%）ことが必要であり、本発明はかかる知見に主として基づくものである。

【0008】 本発明で用いられるアルカリ金属硫化物としては、硫化リチウム、硫化ナトリウム、硫化カリウム、硫化ルビジウム、硫化セシウム及びその混合物が含まれる。また、かかるアルカリ金属水酸化物としては、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化ルビジウム、水酸化セシウム及びその混合物が含まれる。

【0009】 前記のアルカリ金属硫化物は、反応中にアルカリ金属硫化物とアルカリ金属水酸化物とから合成されてもよい。この場合においてはアルカリ金属水酸化

物は、アルカリ金属水硫化物と反応してアルカリ金属硫化物を生成させるために必要な量に加えて、生成したアルカリ金属硫化物に対して3~20%、好ましくは4~10%（モル比）を添加することになる。

【0010】アルカリ金属水硫化物としては、水硫化リチウム、水硫化ナトリウム、水硫化カリウム、水硫化ルビジウム、水硫化セシウム及びその混合物が含まれる。かかるアルカリ金属硫化物、アルカリ金属水酸化物及びアルカリ金属水硫化物は水和物および／または水性混合物あるいは無水の形で用いることができ、その形状にも制限はなく、結晶、フレーク状、溶液状、熔融状態いずれでもよい。

【0011】アルカリ金属硫化物によってスルフィド化されるポリハロ芳香族化合物は、芳香核に直接結合した2個のハロゲン原子を有するハロゲン化芳香族化合物であり、具体的には、p-ジクロロベンゼン、m-ジクロロベンゼン、o-ジクロロベンゼン、トリクロロベンゼン、テトラクロロベンゼン、ジクロロナフタレン、トリクロロナフタレン、ジプロモベンゼン、トリプロモベンゼン、ジプロモナフタレン、ジヨードベンゼン、トリヨードベンゼン、ジクロロジフェニルスルホン、ジプロモジフェニルスルホン、ジクロロベンゾフェノン、ジプロモベンゾフェノン、ジクロロジフェニルエーテル、ジプロモジフェニルエーテル、ジクロロジフェニルスルフィド、ジプロモジフェニルスルフィド、ジクロロビフェニル、ジプロモビフェニル等、及びこれらの混合物等のジハロ芳香族化合物が使用される。

【0012】本発明で用いる極性有機溶媒としては、ホルムアミド、アセトアミド、N-メチルホルムアミド、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、2-ピロリドン、N-メチル-2-ピロリドン、N-エチル-2-ピロリドン、ε-カプロラクタム、N-メチル-ε-カプロラクタム、ヘキサメチルホスホルアミド、テトラメチル尿素、N,N-ジメチルプロピレン尿素、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン酸のアミド尿素及びラクタム類；スルホラン、ジメチルスルホラン等のスルホン類；ベンゾニトリル等のニトリル類；メチルフェニルケトン等のケトン類；ポリエチレングリコール等及びその混合物があげられる。

【0013】使用するポリハロ芳香族化合物の量的割合は、アルカリ金属硫化物に対するモル比で、0.50~10.0、好ましくは0.80~5.0の範囲である。また、本発明における極性有機溶媒の使用量は、アルカリ金属硫化物に対するモル比で10~20.0、好ましくは8.0~30.0の範囲である。

【0014】本発明のPAS製造時における反応温度は80~300℃の範囲であり、反応途中でその温度を段階的に、もしくは連続的に変化させることができる。また反応時間は、反応温度にも影響されるが、0.5~30時間、好ましくは1~15時間の範囲である。反応時

間がこの範囲より短いと、十分な粘度のポリマーを得ることが困難になり、また反応時間がこの範囲より長いと、生産性が悪くなる。またこの反応は、好ましくは、不活性ガスの雰囲気下で行われる。

【0015】重合反応系内に存在する水分量は、アルカリ金属硫化物に対し0.5~5モル、好ましくは0.6~2.0モル更に好ましくは0.7~1.5モルである。反応系内における水分量が前記した範囲より少ない場合は重合反応の遂行が困難である。

【0016】PAS製造における反応装置としては、槽型、管型等いずれでもよく、また回分操作、半回分操作、流通操作のいずれで反応を行ってもかまわない。

【0017】前記の反応によって得られたPASは、通常の方法、例えば、反応終了後の反応混合物のろ過、引き続き水洗により、または反応混合物の水による希釈、引き続き、ろ過及び水洗する方法等によって反応混合物から分離、精製することができる。ここで、PASを反応混合物から分離、精製する際に、まず溶媒を蒸留回収し、多量の水を添加してろ過した後に、さらに120~300℃の熱水にて洗浄するプロセスを含む方法を用いることは、エポキシシランとの反応性が一層向上したPASを得る上で有効な手段である。

【0018】また前記した方法によって製造されるPASの精製方法として、酸によって処理する方法を用いることは、エポキシシランとの反応性がさらに向上したPASが得られるために有効である。用いる酸としては、取扱いの容易さ、経済性の点で希塩酸、希りん酸、希酢酸等を用いるのが好ましい。またこのような酸洗浄の条件としては、ポリマー1重量部に対し30~95℃の温水2~20重量部を加えたのスラリー状混合物に対し、pH=0.5~5.5、好ましくは1.0~3.5となるように酸を加え、10分以上攪拌後ろ過し、さらに水を加えて、ろ液のpHが6.0~8.0になるまで繰り返し水洗を行うことが好ましい。攪拌時間が短かったりpH値が高すぎたりすると、酸洗浄の効果が小さく、またpH値が低すぎるとポリマーの劣化を引き起こす可能性があるため注意が必要である。

【0019】本発明のPASは、316℃におけるメルトフローレート（FRと略す）が600g/10分以上であることもまた必須であり、したがって該FRの範囲内となるように製造時の反応条件を調整することが必要である（ASTM法D-1238-74で測定）。FRが600g/10分未満であると、エポキシシランを添加することによる溶融粘度の上昇が大きいため、流動性が悪く成形が困難になる。但し、製造されたPASを熱架橋処理すると、エポキシシランとの反応性が影響を受けるため、熱架橋処理したPASのエポキシシラン添加前のFRが、この値より低くてもよい場合もある。

【0020】強度、耐熱性、寸法安定性等の性能を改善するために、前記した本発明のPASに加えてエポキシ

基を有するシラン系化合物と各種充填材とを組み合わせ使用することは好適である。

【0021】本発明のPASの添加剤として用いる、エポキシ基を有するシラン系化合物の例としては、前記のγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシランのほかγ-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、β-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン等があげられる。また、これらのエポキシシランの添加量は、樹脂組成物100重量部中0.01~5.0重量部、好ましくは0.05~3.0重量部の範囲である。

【0022】充填材としては、繊維状充填材、無機充填材等が挙げられる。繊維状充填材としては、ガラス繊維、炭素繊維、シランガラス繊維、セラミック繊維、アラミド繊維、金属繊維、チタン酸カリウム、炭化珪素、硫酸カルシウム、珪酸カルシウム等の繊維、ウラストナイト等の天然繊維等が使用できる。また無機充填材としては、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、クレー、パイロフェライト、ベントナイト、セリサイト、ゼオライト、マイカ、雲母、タルク、アタルバルジャイト、フェライト、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ガラスビーズ等が使用できる。充填材の樹脂組成物中に占める割合は、樹脂組成物100重量部中5~80重量部の範囲内であることが成形加工上から好ましい。

【0023】製造される本発明のPASの具体例として、代表的にはPPS(ポリフェニレンスルフィド)があげられる。しかし前記した方法によって製造されるPASはこのものに限らず、前記の原料によって製造するすべてのポリマー及びその共重合体がある。これらのPASはエポキシシランを添加することにより、射出成形用、圧縮成形用、フィルム・繊維・シート・管・チューブなどの押出成形品及びブロー成形品、トランジスタ・コンデンサ・IC等の電子部品の封止に用いられるような非常に優れた性質を付与させることができる。エポキシシランを添加しない場合においても、このような用途に使用することが可能であることはいうまでもない。また、エポキシシランを添加する／しないに係わらず、必要ならばこのポリマーに、前記した充填材のほか顔料、難燃剤、安定化剤及び他のシランカップリング剤や他のポリマーを配合することも好適である。

#### 【0024】

【実施例】以下、本発明の方法を実施例及び比較例により具体的に説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

【0025】(1)メルトフローレート(FR)の測定 PASの316℃におけるメルトフローレートは、ASTM法D-1238-74に準じて測定。

【0026】(2)エポキシシラン添加時の熔融粘度の上昇度の評価方法

γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン1.0% (対ポリマー重量比)添加熔融混練時の、熔融粘度の上昇度で評価を行った。ここで、熔融混練は、ラボプラストミル(20~200℃、R-60タイプミキサー使用、東洋精機製)を用いて、320℃、100rpmで、5分間行った。また、エポキシシラン添加熔融混練時の熔融粘度上昇度は、次式で表される。

上昇度=(エポキシシラン未添加時のFR)/(添加後のFR)

#### 【0027】実施例1

底弁を有する攪拌機付4.5リットルオートクレーブに、硫化ナトリウム2.9水和物556.1g(4.271モル)、N-メチルピロリドン1500g、48.0%水酸化ナトリウム水溶液21.4g(0.257モル(硫化ナトリウムに対して6.0モル%))を仕込み、窒素雰囲気下で200℃まで2時間かけて150rpmで攪拌しながら徐々に昇温し、水及び若干のN-メチルピロリドンの混合物を留出させた。最終的な留出分は146.01gであった。本留出分中の水分及び硫黄分を測定したところ、水分130.94g(理論留出水量234.07g)、硫黄分13.5ミリモル(仕込硫黄分に対して0.32%)を含有していた。

【0028】次いでこの系を密閉し、p-ジクロロベンゼン638.41g(4.343モル)及びN-メチルピロリドン348.4gを加え、220℃で4.5時間重合を行った。その後30分かけて255℃まで昇温し、さらに3時間反応を続行した。反応終了後、室温まで冷却した後に、反応混合物スラリーを常法に従い多量の温水で希釈後、水洗洗浄、乾燥して、微褐色のポリフェニレンスルフィド445.6g(収率96.9%)を得た。本ポリマーのFRは900g/10分、熔融粘度上昇度は5.4であった。

#### 【0029】実施例2

反応終了後、反応混合物スラリーから溶媒及び副生した水等を留去し、これに多量の水を加えて洗浄した後に、さらにポリマーに対して10倍重量の水を加え200℃で30分加熱攪拌した後にろ過、水洗洗浄、乾燥したこと以外は、実施例1と同様な操作を行った。微褐色のポリフェニレンスルフィド445.7g(収率96.9%)を得た。本ポリマーのFRは1000g/10分、熔融粘度上昇度は7.8であった。

#### 【0030】実施例3

実施例2において、ポリマーに対して10倍重量の水を添加し200℃で30分加熱攪拌、ろ過を行った後で、さらに10倍重量の80℃温水を加え、保温攪拌しながらリン酸にてpH=2.0に調整し、30分間攪拌した後にろ過、水洗洗浄、乾燥したこと以外は、実施例2と同様な操作を行った。微褐色のポリフェニレンスルフィド445.4g(収率96.9%)を得た。本ポリマーのFRは1050g/10分、熔融粘度上昇度は8.1

であった。

#### 【0031】実施例4

実施例3で得られたポリマーを、空気存在下で220℃にて6時間加熱架橋した。本ポリマーのFRは412g/10分、熔融粘度上昇度は7.4であった。

#### 【0032】実施例5

実施例3で得られたポリマーを、空気存在下で220℃にて12時間加熱架橋した。本ポリマーのFRは202g/10分、熔融粘度上昇度は7.1であった。

【0033】以上の実施例においては、合成時の水酸化ナトリウム仕込量は、硫化ナトリウムに対してすべて6.0モル%である。これに対して、以下に説明する比較例においては、水酸化ナトリウム仕込量は、すべて2.0モル%である。

#### 【0034】比較例1

底弁を有する攪拌機付4.5リットルオートクレーブに、硫化ナトリウム2.9水和物556.1g(4.271モル)、N-メチルピロリドン1500g、48.0%水酸化ナトリウム水溶液7.13g(0.0856モル(硫化ナトリウムに対して2.0モル%))を仕込み、窒素雰囲気下で200℃まで2時間かけて150rpmで攪拌しながら徐々に昇温し、水及び若干のN-メチルピロリドンの混合物を留出させた。最終的な留出分は144.55gであった。本留出分中の水分及び硫黄分を測定したところ、水分123.60g(理論留出水量226.65g)、硫黄分13.6ミリモル(仕込硫黄分に対して0.32%)を含有していた。

【0035】次いでこの系を密閉し、p-ジクロロベンゼン638.41g(4.343モル)及びN-メチルピロリドン348.4gを加え、220℃で4.5時間重合を行った。その後30分かけて255℃まで昇温し、さらに3時間反応を続行した。反応終了後、室温まで冷却した後に、反応混合物スラリーを常法に従い多量の温水で希釈後、水洗洗浄、乾燥して、微褐色のポリフェニレンスルフィド445.8g(収率97.0%)を得た。本ポリマーのFRは700g/10分、熔融粘度上昇度は1.1であった。

#### 【0036】比較例2

反応終了後、反応混合物スラリーから溶媒及び副生した

水等を留去し、これに多量の水を加えて洗浄した後に、さらにポリマーに対して10倍重量の水を加え200℃で30分加熱攪拌した後にろ過、水洗洗浄、乾燥したことで以外は、比較例1と同様な操作を行った。微褐色のポリフェニレンスルフィド446.0g(収率97.0%)を得た。本ポリマーのFRは750g/10分、熔融粘度上昇度は1.9であった。

#### 【0037】比較例3

比較例2において、ポリマーに対して10倍重量の水を添加し200℃で30分加熱攪拌、ろ過を行った後で、さらに10倍重量の80℃温水を加え、保温攪拌しながらリン酸にてpH=2.0に調整し30分間攪拌した後にろ過、水洗洗浄、乾燥したこと以外は、比較例2と同様な操作を行った。微褐色のポリフェニレンスルフィド445.6g(収率96.9%)を得た。本ポリマーのFRは760g/10分、熔融粘度上昇度は2.1であった。

#### 【0038】比較例4

比較例3で得られたポリマーを、空気存在下で220℃にて10時間加熱架橋した。本ポリマーのFRは391g/10分、熔融粘度上昇度は1.8であった。

#### 【0039】比較例5

比較例3で得られたポリマーを、空気存在下で220℃にて21時間加熱架橋した。本ポリマーのFRは207g/10分、熔融粘度上昇度は1.5であった。

#### 【0040】実施例6~10、比較例6~10

上記実施例1~5で得られたPPS60重量部、ガラス繊維(RES03-TP86 日本硝子繊維(株)製)40重量部及びアークグリシドキシプロビルトリメトキシシラン(日本ユニカー(株)製)0.3重量部を混合し、この混合物を押出し機にて320℃で熔融混練し、ペレット化した。また比較のため上記比較例1~5で得られたPPSを用いて同様にペレット化した。

【0041】得られたそれぞれのペレットを射出成形機にて、樹脂温度320℃、金型温度150℃で物性測定用のテストピースを作成し、物性を測定した。結果を表1~2に示す。

#### 【0042】

【表1】

実 施 例	6	7	8	9	10
PPSのFR (g/10分) の粘度上昇度	900 5.4	1000 7.8	1050 8.1	412 7.4	202 7.1
配 合 (重量%)					
PPS	60	60	60	60	60
ガラス繊維	40	40	40	40	40
エポキシシラン	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
物 性					
コンパクトのFR (g/10分)	110	100	120	45	22
曲げ強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	2300	2400	2400	2900	3000
曲げ伸び (%)	2.0	2.2	2.2	2.8	2.9
アイゾット衝撃値 (ノッチ無)	40	44	47	70	78

【0043】すべてア－グリシドキシプロビルトリメトキシシランを使用 \* 【0044】  
\* 【表2】

比 較 例	6	7	8	9	10
PPSのFR (g/10分) の粘度上昇度	700 1.1	750 1.9	760 2.1	391 1.8	207 1.5
配 合 (重量%)					
PPS	60	60	60	60	60
ガラス繊維	40	40	40	40	40
エポキシシラン	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
物 性					
コンパクトのFR (g/10分)	140	120	120	65	36
曲げ強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	1500	1750	1850	2100	2300
曲げ伸び (%)	1.1	1.3	1.4	1.6	1.8
アイゾット衝撃値 (ノッチ無)	19	23	24	29	35

【0045】すべてア－グリシドキシプロビルトリメトキシシランを使用

【0046】実施例11～13

実施例3～5で得られたPPS60重量部、ガラス繊維40重量部及びア－グリシドキシプロビルトリメトキシシラン0.1重量部を混合したものについても同様にベレット化した。

【0047】実施例14

実施例3で得られたPPS60重量部、ガラス繊維40重量部及びβ-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エ

チルトリメトキシシラン(日本ユニカー(株)製)0.3重量部を混合したものについても同様にベレット化した。

【0048】得られたそれぞれのベレットを射出成形機にて、樹脂温度320℃、金型温度150℃で物性測定用のテストピースを作成し、物性を測定した。結果を表3に示す。

【0049】

【表3】

実施例	11	12	13	14
PPSのFR (g/10分)	1050	412	202	1050
の粘度上昇度	8.1	7.4	7.1	8.1
配合 (重量%)				
PPS	60	60	60	60
ガラス繊維	40	40	40	40
エポキシシラン	0.1	0.1	0.1	a)0.3
物性				
コンパウンドのFR (g/10分)	170	70	33	130
曲げ強度 (kg/cm <sup>2</sup> )	2250	2850	2900	2300
曲げ伸び (%)	1.9	2.6	2.8	2.1
アイゾット衝撃値 (J/φ無)	35	67	72	42

【0050】(a):  $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン使用

他はすべてア-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン使用

【0051】エポキシシランを0.3%添加した実施例6~10、14においては、おなじエポキシシラン添加量である比較例6~10に比べて、非常によい成形物性を示した。また、エポキシシラン添加量を0.1%に減らした実施例11~13においても、同程度のコンパウンドのFRを有する比較例と比べて優れた成形物性を維

持している。

【0052】

【発明の効果】本発明のPASは、従来のPASに比べてエポキシシランとの反応性が大きく、エポキシシランを添加した際の機械的物性等の向上効果が大きい。したがって、従来量のエポキシシランを添加した場合、これらの物性は著しく改良される。また、より少ない添加量においても、従来以上の優れた物性を達成することができ、射出成形用、電子部品等の封止用等に大変有用なPAS成形材料となり得る。